Nº d'enregistrement
au C.N.R.S.
AO.1058

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en partie

LA THESE DE DOCTORAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES
DE PARIS

par

Monsieur Claude BUDIN
Ingénieur E.C.P.

pour obtenir

le grade de Docteur Es-Sciences

Sujet de la Thése: Etude des défauts ponctuels dans l'aluminium

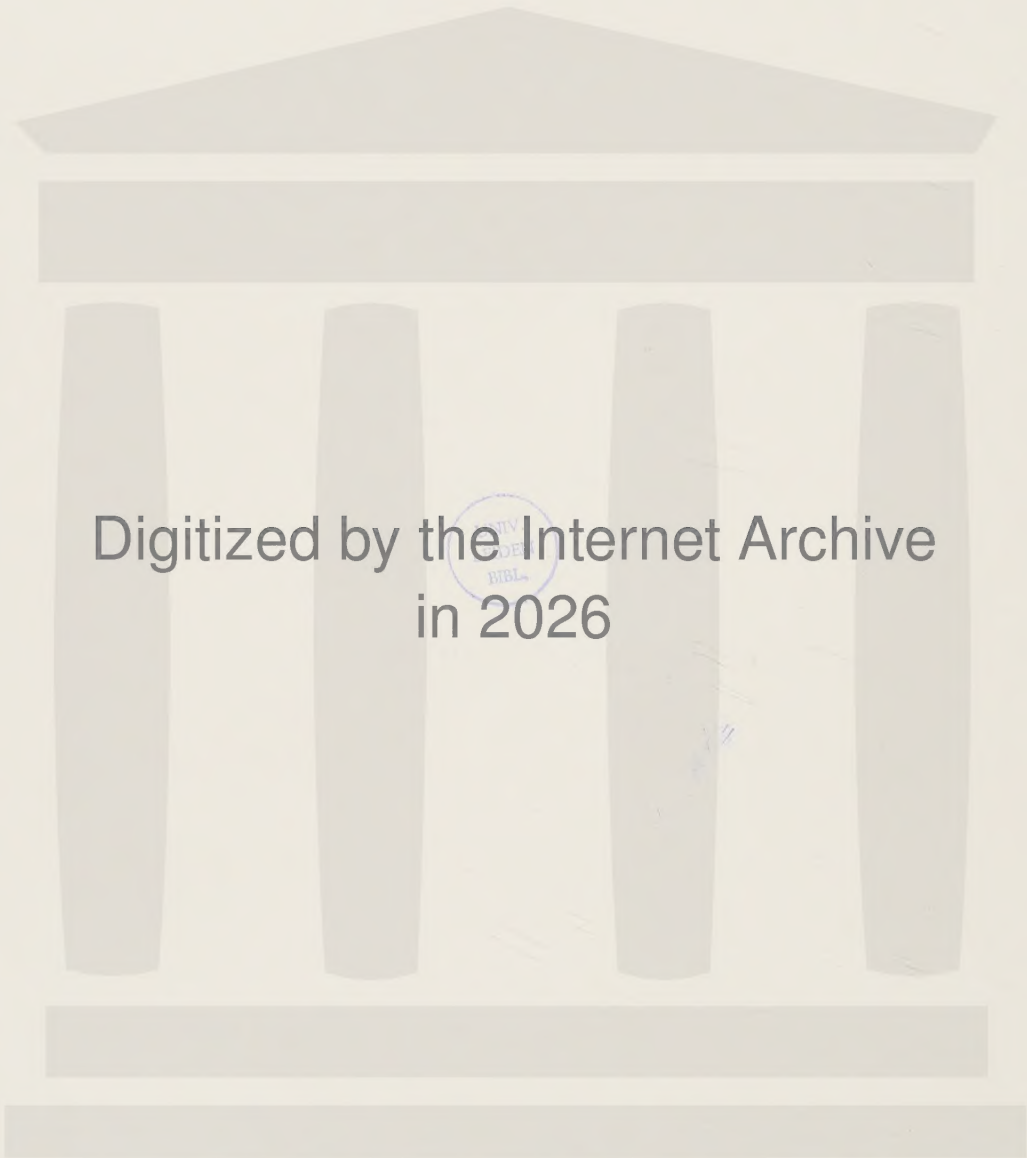
soutenue le 10 AVR. 1967 devant la Commission d'Examen

Melle	CAUCHOIS	Président
MM.	CURIEN	Examinateurs
	FRIEDEL	
	LUCASSON	Rapporteur

MÉTHODE D'ÉTUDE DES DÉFAUTS PONCTUELS DANS LES MÉTAUX

(A method for studying point defects in metals)

par Claude BUDIN et Pierre LUCASSON


Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41545806_0019

MÉTHODE D'ÉTUDE DES DÉFAUTS PONCTUELS DANS LES MÉTAUX *

(A method for studying point defects in metals)

par Claude BUDIN et Pierre LUCASSON

RÉSUMÉ

Des trempes et des irradiations combinées permettent d'étudier les interstitiels dans les métaux. Une étude a été faite sur l'aluminium et sur le cuivre par mesure de la résistivité électrique à la température de l'azote liquide.

De l'aluminium était irradié à — 170 °C par des électrons de 1,45 MeV après avoir été soit recuit, soit trempé au préalable. Des recuits isochrones et isothermes permettaient ensuite d'étudier la restauration des propriétés électriques. Les résultats sont les suivants :

— L'étape III (correspondant au recuit des défauts induits par irradiation) obéit à une réaction d'ordre 2.

— Pour des accroissements équivalents de résistivité, les points d'inflexion des isochrones correspondant au recuit des défauts lacunaires (induits par trempe) sont situés dans l'échelle des températures 50° plus haut que ceux de l'étape III.

— Une trempe préalable déplace le point d'inflexion des isochrones correspondant au recuit de l'étape III vers les basses températures.

Ces résultats montrent que l'étape III est due à une réaction du type I (mobile) + L (fixe) → O.

De plus, jointes aux courbes de production des défauts, les isochrones montrent que :

— L'accroissement de résistivité correspondant à l'étape II est proportionnel au flux d'électrons et qu'une trempe préalable est sans effet sur cet accroissement et sur le recuit de l'étape II.

— L'accroissement de résistivité correspondant à l'étape III est de la forme $\Delta\rho = A(I - e^{-B\phi})$ et que l'augmentation de résistivité par électron incident est d'autant plus faible que la trempe est plus forte.

Des recuits isothermes ont donné comme valeur de l'énergie de migration des interstitiels mobiles dans l'étape III :

$$E = 0{,}58 \pm 0{,}03 \text{ eV}$$

De l'ensemble des résultats expérimentaux, il est possible d'évaluer le rapport de la résistivité spécifique d'un interstitiel à celle d'une lacune.

Une étude préliminaire semblable a été réalisée sur le cuivre ; seulement des résultats qualitatifs ont été obtenus. Une étude isochrone de la restauration des propriétés électriques montre que l'étape III est due à une réaction du type :

$$I \text{ (mobile)} + L \text{ (fixe)} \rightarrow O$$

ABSTRACT

Interstitial atoms in metals can be studied by means of combined quenchings and irradiations. Investigations on aluminium and copper were made by electrical resistivity measurements at liquid nitrogen temperature.

After preliminary annealing or quenching treatment, aluminium was irradiated at — 170 °C by 1.45 MeV electrons. The recovery of the electrical properties was then studied by isochronal and isothermal annealings. The results are as follows :

— Stage III (corresponding to the annealing of irradiation- induced defects) obeys a 2nd order reaction.

— For equivalent values of the resistivity increases, the points of inflexion of the isochronal curves corresponding to the annealing of vacancy defect (induced by quench) lie in the temperature scale 50° higher than those of stage III.

— A preliminary quench shifts the middle point of the stage III isochronal curves towards low temperatures.

This result shows that stage III is due to a reaction of the type :

$$I \text{ (mobile)} + V \text{ (at rest)} \rightarrow O$$

Together with the defect production curves the isochronal curves also show that :

— The resistivity increase corresponding to stage II is proportionnal to the electron flux, and a preliminary quench, has no effect neither on this increase nor on the stage II.

— The resistivity increase corresponding to stage III is given by $\Delta\rho = A(I - e^{-B\phi})$ and the resistivity increase per incident electron is the smaller the stronger the quench.

Isothermal anneals give the following value for the migration energy of mobile interstitial atoms in stage III :

$$E = 0.58 + 0.03 \text{ V}$$

From the experimental results it is possible to make an estimate of the ratio of the specific resistivity of an interstitial to that of a vacancy.

A similar but preliminary study has been carried out on copper. Only qualitative results have been obtained. An isochronal study of the recovery of the electrical properties shows that stage III is due to a reaction of the type :

$$I \text{ (mobile)} + V \text{ (at rest)} \rightarrow O$$

(*) Ce travail est une partie de la thèse de Doctorat d'Etat ès-Sciences (physique du métal) de Claude Budin, soutenance probable fin 1966, numéro d'enregistrement au C.N.R.S. (15, quai Anatole-France, Paris-7e), A.O. 1058.

GÉNÉRALITÉS

Bien que les physiciens du solide aient porté un grand intérêt aux défauts ponctuels dans les métaux depuis déjà une vingtaine d'années, ces défauts — lacunes et atomes interstitiels — restent encore relativement mal connus. Cette méconnaissance tient surtout aux difficultés diverses qu'il y a à les produire et à les dénombrer. En effet, — dans les métaux cubiques à faces centrées tout au moins, — seules les lacunes peuvent, par élévation de température, être créées à « l'état pur » et à des concentrations (10^{-3} à 10^{-5}) qui rendent aisées certaines mesures physiques. De ce fait, les lacunes sont, dans certains métaux, relativement bien connues, grâce, en particulier, aux travaux soigneux de Simmons et Balluffi [1]. Par contre, il n'est pas possible de créer des atomes interstitiels à l'état pur. Si l'on irradie un métal par des électrons ou des photons γ d'énergie convenable, l'on produit des interstitiels mais aussi des lacunes en nombre égal. Il est aussi possible de recourir à l'écrouissage mais le résultat est encore plus complexe, car les atomes interstitiels créés par ce moyen sont accompagnés de lacunes et d'une grande quantité de dislocations. De plus, les concentrations des défauts réticulaires produits ne sont plus alors reliées par une relation bien définie. Les conditions expérimentales les plus favorables à l'étude des défauts ponctuels semblent donc pouvoir être trouvées dans l'utilisation de températures élevées (suivies éventuellement de trempes) pour étudier les lacunes, et dans celle des irradiations aux électrons pour les interstitiels. Malgré leur apparente simplicité ces méthodes n'en conduisent cependant pas moins à des situations fort complexes, pour des raisons différentes d'ailleurs.

En ce qui concerne les lacunes, la principale difficulté vient de leur tendance à se « rassembler ». Les bi- et les tri-lacunes étant plus mobiles que les monolacunes, toute étude de disparition thermique des défauts lacunaires après trempe donnera en général — si l'on essaie de l'analyser en fonction du mouvement de lacunes seules — des énergies d'activation apparentes non constantes et intermédiaires entre celle des monolacunes et celle des bilacunes. Si l'on effectue une série de trempes d'un échantillon métallique de températures de plus en plus élevées les isochrones correspondantes, exprimées en pour cent de la restauration de la résistance trempée, formeront une famille de courbes en S, semblables mais décalées de plus en plus vers les basses températures et correspondant à des énergies d'activation apparentes moyennes de plus en plus faibles. C'est que la concentration partielle en bilacunes devient de plus en plus importante.

La difficulté principale qui se présente dans l'étude des interstitiels est que, n'étant pas produits seuls mais toujours en même temps que des lacunes, il n'est pas toujours aisé de faire la part de ce qui est dû à l'un ou l'autre de ces défauts. Une étape de restauration d'une propriété physique comme la résistivité électrique pourra être due :

— à un mouvement libre de l'un ou l'autre des défauts,

— au mouvement de l'un en interaction élastique avec l'autre,

— à un mouvement correllé.

Les choses se compliquent encore plus lorsque l'on admet avec certains théoriciens, l'existence de deux sortes d'interstitiels. Aussi parmi les 5 étapes de restauration qu'une isochrone permet de distinguer dans la guérison d'un métal comme le cuivre, irradié, les étapes I_d et I_e et III donnent elles toujours lieu à discussion quant à leur interprétation.

Et cependant, chacune de ces méthodes possède des qualités propres :

— si l'élévation de température suivie ou non de trempe conduit à un mélange de défauts, du moins s'agit-il de défauts d'une espèce définie : *lacunaire*,

— si l'irradiation conduit à deux sortes de défauts, du moins peut-on faire en sorte qu'ils soient tous deux simples : *mono-interstitiels* et *mono-lacunes*.

Tirer parti de ces qualités en combinant les techniques de trempe et d'irradiation de façon à pouvoir surmonter les difficultés inhérentes à chacune d'elles prise séparément, tel a été le but de ce travail.

Celui-ci peut être partagé en deux parties. La première utilise les résultats expérimentaux bruts de façon qualitative et aboutit à l'identification de défauts ponctuels. La seconde utilise ces résultats quantitativement et tente de déduire certaines propriétés physiques caractéristiques des atomes interstitiels des propriétés correspondantes des lacunes. Pour la première, nous nous sommes appuyés sur l'étude du taux de formation des paires de Frenkel en fonction du flux électrons et sur celle des courbes isochrones obtenues après trempe, après irradiation et après des expériences combinées. Pour la seconde, la méthode de choix a été l'étude isotherme des cinétiques de disparition des défauts puis l'étude quantitative des isochrones, mais nous avons également tiré partie des courbes de formation des paires.

Principe des méthodes isothermes et isochrones d'étude quantitative

Ces méthodes consistent à étudier les effets d'une trempe sur la cinétique de recuit d'un processus que l'on choisit d'étudier :

Soit, pour fixer les idées, une réaction

$$A + B \longrightarrow AB \qquad (1)$$

où AB soit parfaitement connu

et où il soit possible de modifier la concentration de B (connue) à volonté. Si A est inconnu il sera possible de déterminer sa nature et certaines de ses propriétés en étudiant les modifications de cinétique obtenues en changeant B.

Cette méthode doit s'appliquer fort bien aux métaux irradiés. Si l'on veut étudier les atomes interstitiels en

fonction, par exemple, des lacunes, il est indiqué d'étudier un processus de recombinaison :

$$I + L \rightarrow 0 \qquad (2)$$

A priori seule importe pour cette étude la nature de la réaction.

Nous avons jugé particulièrement commode d'analyser l'étape III. Cette étape, qui se situe en général au voisinage de la température ordinaire a été soigneusement étudiée dans un grand nombre de métaux. Elle correspond à une réaction du second ordre, et la plupart des auteurs s'accordent pour l'attribuer à une réaction du type (2).

A. — Etudes isothermes de la restauration d'une propriété physique

Supposons que nous tracions des isothermes correspondant à une réaction de type 2. Après une irradiation seule, les concentrations C_i d'interstitiels et C_l de lacunes formées sont égales :

$C_i = C_l$ et par recuit à température T :

$$\pi_I = \frac{dC_I}{dt} = \frac{dC_l}{dt} = -K.C_i.C_l.\exp(-E/kT) \qquad (3)$$

où t est le temps,

K une constante,

k la constante de Bolzmann,

E énergie d'activation.

Si l'irradiation a été précédée d'une trempe qui a introduit une concentration C^o_l de lacunes, après la même irradiation que précédemment pendant le même recuit,

$$\pi_{T+I} = \frac{dC_I}{dt} = \frac{dC_l}{dt} = -K.C_i.(C_l + C^o_l) \exp(-E/kT) \qquad (4)$$

La réaction est donc accélérée par la trempe préalable. De plus, celle-ci change la cinétique et, à la fin du processus, l'ordre apparent de réaction tend vers 1 car $C_l << C^o_l$ de sorte que l'on a :

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{dC_l}{dt} \cong -K.C_i.C^o_l.\exp(-E/kT) \qquad (5)$$

Les courbes (T + I) et (I) de la figure 1 montrent l'allure des phénomènes. Considérons alors les points A et B de chacune de ces isothermes, où les concentrations $C_i = C_l$ des défauts dus à l'irradiation sont égales. En ces points :

$$\frac{\pi_I}{\pi_{T+I}} = \alpha = \frac{C_l}{C_l + C^o_l} \qquad (6)$$

d'où :

$$C_l = \frac{\alpha}{1-\alpha} C^o_l \qquad (7)$$

Soit alors p une propriété physique étudiée, telle que les variations Δp soient proportionnelles aux concentrations en défauts. Aux points A et B :

$$\Delta p = p_i.C_i + p_l.C_l = (p_i + p_l)\,C_l \qquad (8)$$

puisque : $C_i = C_l$

On en tire :

$$\frac{p_i}{p_l} = \beta = \frac{\Delta p}{\Delta p^o_l}\frac{1-\alpha}{\alpha} - 1 \qquad (9)$$

où Δp^o_l est la variation de propriété mesurée après trempe ($\Delta p^o_l = p_l.C^o_l$).

p_l représente une propriété d'une lacune (résistivité, énergie de formation ou potentielle, volume de formation, etc.). Certaines de ces propriétés sont connues.

p_i représente la propriété correspondante d'un atome interstitiel. Il n'en existe pas qui soient connues avec précision.

L'intérêt de la relation [9] est de donner p_i en fonction de p_l.

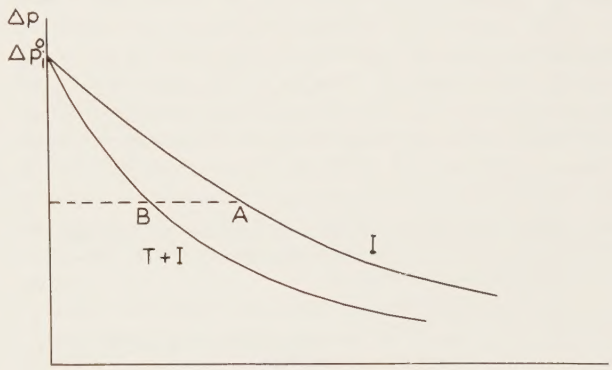


FIG. 1

Forme des courbes isothermes, montrant la variation d'une propriété physique p en fonction du temps de recuit t à une température T.

(I) : Isotherme obtenue après irradiation seule.

(T + I) : Isotherme obtenue après irradiation avec trempe préalable.

B. — Études isochrones d'une propriété physique

Supposons que la restauration soit étudiée à l'aide de recuits isochrones dont la succession équivaille à un réchauffement continu selon la loi $T = At$ où T est la température, t le temps et A la vitesse de réchauffement*. Avec les mêmes notations que précédemment, on a (avec $C_L = C_l + C^o_l$)

$$\frac{dC_i}{dt} = \frac{dC_l}{dt} = -K.C_i.C_L.\exp(-E/kT) \qquad (10)$$

(*) Cette équivalence sera montrée par ailleurs [15].

Le point d'inflexion de l'isochrone sera situé à une température T_i telle que :

$$\left[\frac{d^2\,\Delta p}{d\,T^2}\right]_{T=Ti} = 0 \qquad (11)$$

et l'on trouve aisément qu'en ce point :

$$C_i + C_L = \frac{EA}{kK}\,\frac{\exp\,(E/kT_i)}{T_i^2} \qquad (12)$$

Effectuons alors deux expériences successives (fig. 2) :

1) faisons d'abord les recuits isochrones après une irradiation (I) à température un peu inférieure à celle de l'étape III, et telle qu'elle entraîne une variation Δp_1 de la propriété étudiée p.

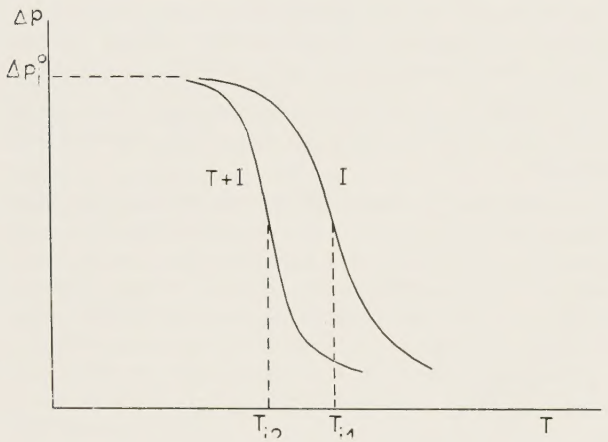


FIG. 2

Forme des courbes isochrones montrant la variation d'une propriété physique p en fonction de la température de recuit T.

(I) : Isochrone obtenue après une irradiation seule.

(T + I) : Isochrone obtenue après une irradiation avec trempe préalable.

Au point d'inflexion de l'isochrone correspondant à l'étape III, les concentrations en défauts sont telles que :

$$C_{i1} + C_{l1} = 2C_{i1} = \frac{EA}{kK}\,\frac{\exp\,(E/kT_{i1})}{T_{i1}^2}$$

2) faisons ensuite cette étude isochrone après une trempe d'où résulte la variation $\Delta p^0{}_l = p_l . C^0{}_l$ de p suivie immédiatement d'une irradiation qui fasse varier p de $\Delta p_2 = \Delta p_1$.

Au point d'inflexion correspondant à l'étape III de l'isochrone (T + I) obtenue, on a :

$$C_{i2} + C_{l2} + C^0{}_l = \frac{EA}{kK}\,\frac{\exp\,(E/kT_{i2})}{T_{i2}^2}$$

Si :

$$C_{i1} = C_{l1} = C_{i2} = C_{l2}$$

on a par soustraction :

$$C^0{}_l = \frac{EA}{kK}\left[\frac{\exp\,(E/kT_{i2})}{T_{i2}^2} - \frac{\exp\,(E/T_{i1})}{T_{i1}^2}\right] \qquad (13)$$

et :

$$\frac{p_i}{p_l} = \beta = \frac{2\,\Delta p_i}{\Delta p^0{}_l}\left[\frac{T_{i1}^2 .\,\exp\,(E/kT_{i2})}{T_{i2}^2 .\,\exp\,(E/kT_{i1})} - 1\right] - 1 \qquad (14)$$

La validité des expressions [9] et [14] dépend de deux conditions. La première condition est implicite : il faut que $C^0{}_l$ soit intégralement conservée après l'étape III. Du point de vue de l'expérimentateur, cela signifie que, passée l'étape III, la population lacunaire est identique à celle gelée par trempe, *aux erreurs de mesure près*. La seconde condition a été exprimée : la réaction étudiée doit être une annihilation, d'ordre 2.

C. — Mesure du taux de formation des paires de Frenkel en fonction du flux total d'électrons incidents

Dans la plupart des métaux irradiés à très basse température, une première étape de recuit généralement très importante, se manifeste aux environs de 40 °K. Elle est suivie d'une seconde étape beaucoup moins importante qui s'étend de 60 °K environ jusqu'au-delà de la température de l'azote liquide. La plupart des auteurs s'accordent sur le fait que ces deux étapes correspondent vraisemblablement à des annihilations de lacunes par des atomes interstitiels :

$$\underset{\text{mobile}}{I} + \underset{\text{fixe}}{L} \rightarrow 0 \qquad (15)$$

C'est cette interprétation que nous utilisons dans notre étude, en la vérifiant d'ailleurs *a posteriori*.

Nos irradiations étaient faites à — 170 °C, c'est-à-dire dans l'étape II pour le cuivre aussi bien que l'aluminium. A cette température les défauts lacunaires formés par trempes ont une mobilité pratiquement nulle : seuls les atomes interstitiels peuvent se déplacer pour donner la réaction [15]. Ainsi, à la différence des expériences décrites en (A) et (B) il y a dans celle-ci formation et destruction simultanées de paires de Frenkel. Pour écrire une relation entre les variations de la propriété physique mesurée et le flux d'électrons incident, il faudrait en principe, connaître les mécanismes exacts des réactions qui sont responsables des étapes I et II ; or, certains de ces mécanismes sont encore controversés [2, 3], et nous nous sommes contentés d'une relation approchée. C'est là une première cause d'erreur possible. Une seconde cause d'imprécision dans cette méthode est comme nous le verrons par la suite qu'il est nécessaire de mesurer des pentes $d\Delta p/d\varphi$ de courbes expérimentales de variations Δp d'une propriété en fonction du flux d'électrons φ. Cette méthode est donc moins sûre que les précédentes — dans l'état actuel de notre travail tout au moins — et nous ne l'avons utilisée que pour voir dans quelle mesure les valeurs trouvées par les autres méthodes étaient en accord avec celles qu'elle fournit.

Nous négligeons les phénomènes de capture des atomes interstitiels par des pièges saturables et faisons l'hypothèse qu'à la température de l'irradiation les chances pour qu'un interstitiel se recombine avec une lacune soient simplement proportionnelles à la concentration instantanée en lacunes. Nous avons alors simplement

$$dC_F = A\,(1 - KC_L).d\varphi \qquad (16)$$

où C_F : est la concentration en paires de Frenkel,

C_L : est la concentration totale en lacunes,

C_i : est la concentration totale en interstitiels.

Si un échantillon ne contient pas de lacune au préalable, $C_i = C_L = C_F$. Si avant l'irradiation (I), l'échantillon a subi une trempe (T), il contient initialement une concentration C^o_l en lacunes, de telle sorte que :

$$C_L = C^o_l + C_F$$

dans le premier cas :

$$\left[\frac{dC_F}{d\varphi}\right]_I = A\,(1 - KC_F) \qquad (17)$$

dans le second :

$$\left[\frac{dC_F}{d\varphi}\right]_{T+I} = A\,(1 - K\,(C^o_l + C_F)) \qquad (18)$$

Il en résulte que les courbes $C_F(\varphi)$ correspondantes ne coincident pas.

2) Si l'on considère deux points M et N (fig. 3), un sur chacune de ces courbes tels que les pentes soient égales, en ces points les concentrations en lacunes sont égales :

$$[C_F]_I = [C_F + C^o_l]_{T+I} \qquad (19)$$

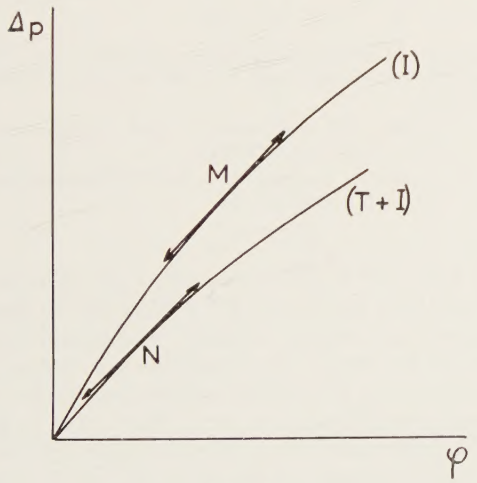


FIG. 3

Forme des courbes de production montrant la variation d'une propriété physique p en fonction du flux d'électrons.

(I) : Irradiation.

(T + I) : Irradiation avec trempe préalable.

3) En des points de ces courbes où :

$$[C_F]_I = [C_F]_{T+I}$$

le rapport des pentes est :

$$\alpha = \frac{1 - K\,(C_F + C^o_l)}{1 - KC_F} = 1 - \frac{KC^o_l}{1 - KC_F} \qquad (20)$$

Si l'on étudie le phénomène en mesurant la propriété p, on a, avec les notations employées précédemment :

$$\boxed{\frac{p_i}{p_l} = \beta = \frac{\Delta p_M - \Delta p_N}{\Delta p^o_l} - 1} \qquad (21)$$

ÉTUDE DE L'ALUMINIUM

Nous avons utilisé les analyses qui précèdent pour étudier l'aluminium irradié par des électrons de 1,45 MeV à la température de — 170 °C. Une première série d'expériences [**4**] avait été réalisée auparavant par nous : les isochrones obtenues nous avaient permis d'obtenir une valeur approchée du rapport $\rho_i/\rho_l = 4{,}5 \pm 1{,}5$ en admettant que l'étape III est un processus du second ordre, par la seconde des méthodes exposées ici. Nous avions également admis que l'énergie d'activation du processus était de 0,55 eV, valeur différente de celle déterminée ici. L'étude des résultats expérimentaux bruts nous a alors amenés à déterminer les conditions expérimentales à réaliser pour obtenir une meilleure précision. Le présent travail en est la conséquence.

DÉTAILS TECHNIQUES

Les échantillons étaient faits de fil d'aluminium de haute pureté de 0,1 mm de diamètre, fourni par Johnson-Mattheys. Avant l'expérience, ils avaient subi un recuit préalable de trois heures à 350 °C sous atmosphère d'hélium. Les trempes préalables étaient faites de températures comprises entre 280 et 350 °C jusqu'à la température de l'azote liquide avec une vitesse initiale d'environ 6 000 °C/s. Trempes et irradiations étaient faites dans la même enceinte. L'appareil utilisé a été décrit par ailleurs, ainsi que les conditions expérimentales [**5**].

Dans cette étude, la propriété physique mesurée était la résistance électrique. Les mesures étaient faites à la température de l'azote liquide. Les augmentations de résistivité résultant d'irradiations précédées ou non de trempes étaient d'abord mesurées en fonction du flux d'électrons φ. Puis, des recuits isochrones ou isothermes étaient effectués pour étudier la cinétique de disparition des défauts.

RÉSULTATS ET DISCUSSION.

I. — ÉTUDE QUALITATIVE DES RÉSULTATS

a. — Formation des défauts

Nous avons représenté figure 4, les courbes de formation $\Delta\rho$ (φ) obtenues au cours de trois séries d'irradiations. La courbe (*a*) correspond à des irradiations seules, telles que $\Delta\rho$ (φ) atteint $5{,}2.10^{-9}$ Ω cm. (Notons

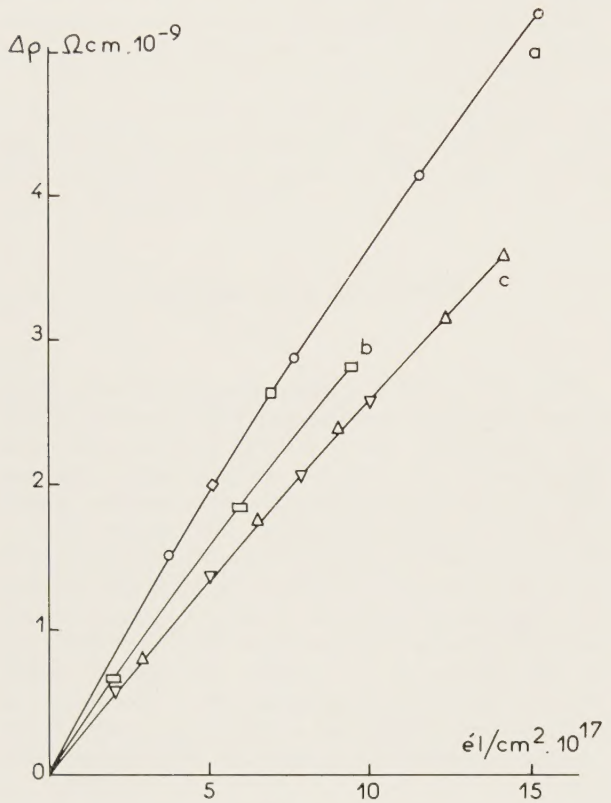


FIG. 4

Accroissement de résistivité $\Delta\rho$ en fonction du flux d'électrons.

Courbe (*a*) : irradiation seule.

Courbe (*b*) : irradiation avec trempe préalable de $1{,}29 . 10^{-9}$ Ω cm.

Courbe (*c*) : irradiation avec trempe préalable de $2{,}24 . 10^{-9}$ Ω cm.

Chaque famille de points correspond à une même irradiation avant les recuits.

que les flux indiqués sont les flux électroniques bruts fournis par l'intégrateur, sans correction d'aucune sorte.) Pour construire les courbes (*b*) et (*c*) nous avons fait précéder les irradiations par des trempes de $1{,}29.10^{-9}$ Ω cm et de $2{,}24.10^{-9}$ Ω cm respectivement.

On constate que plus la trempe est importante et plus $\frac{d\Delta\rho}{d\varphi}$ est faible. Précisons que, dans ces expériences, nous avons alterné les irradiations seules [I] et les trempes suivies d'irradiation (T + I) de façon à nous préserver des conséquences d'une évolution possible de l'échantillon. Les résultats obtenus sont tout à fait en accord avec ceux obtenus précédemment avec un mode opératoire identique [**4**].

Ce comportement des courbes $\Delta\rho$ (φ) est en accord avec l'hypothèse d'un défaut mobile à température de l'expérience et capable de s'annihiler avec une lacune, dont nous savons qu'elle est alors fixe. C'est donc bien le *mouvement d'interstitiels* qui est responsable des réactions de recombinaison dans les étapes I et II.

b. — Étude de la restauration par recuits isochrones

α. — *Examen des isochrones séparées* (*T*) *et* (*I*).

Le simple examen des isochrones (T) obtenues après une trempe et des isochrones (I) obtenues après irradiation montre que les défauts produits par trempe migrent toujours dans un domaine de température différent de celui de l'étape III dans l'aluminium. Par exemple nous avons représenté sur le même diagramme figure 5*a*, l'isochrone (T) obtenue après trempe de

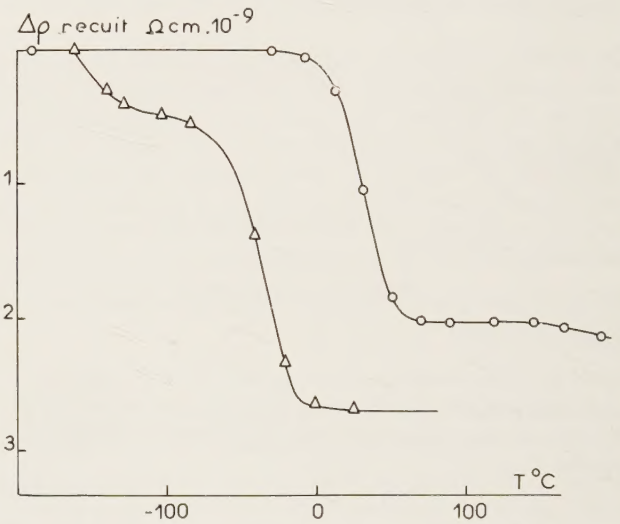


FIG. 5 *a*

Courbes de recuits isochrones. Chaque point correspond à un recuit de 5 minutes à la température indiquée.

○ courbe (T) correspond à une trempe de $\Delta\rho = 2{,}24 . 10^{-9}$ Ω cm.

Δ courbe (I) correspond à une irradiation de $\Delta\rho = 2{,}7 . 10^{-9}$ Ω cm.

$\Delta\rho = 2{,}24.10^{-9}$ Ω cm et l'isochrone (I) obtenue après irradiation telle que $\Delta\rho = 2{,}7.10^{-9}$ Ω cm. La figure 5*b*, représente les courbes dérivées correspondantes. La courbe (T) est tout à fait semblable aux courbes similaires obtenues par d'autres auteurs [**6**, **7**]. La température du point d'inflexion est + 38 °C et la largeur du pic de la courbe dérivée est 35 °C à mi-hauteur. Le point d'inflexion de l'étape III de [I] est à — 35 °C pour une variation de résistivité à peu près égale à celle de l'isochrone (T) et la largeur à mi-hauteur du pic de la courbe dérivée est de 38 °C. La distance des deux pics est donc 73 °C soit environ le double de leurs largeurs. Le fait que les cinétiques des réactions ne sont pas identiques dans l'un et l'autre cas ne permet pas des conclusions

rigoureuses. Cette distance des pics *suggère* cependant fortement que les *défauts mobiles dans l'un et l'autre cas sont de natures différentes.*

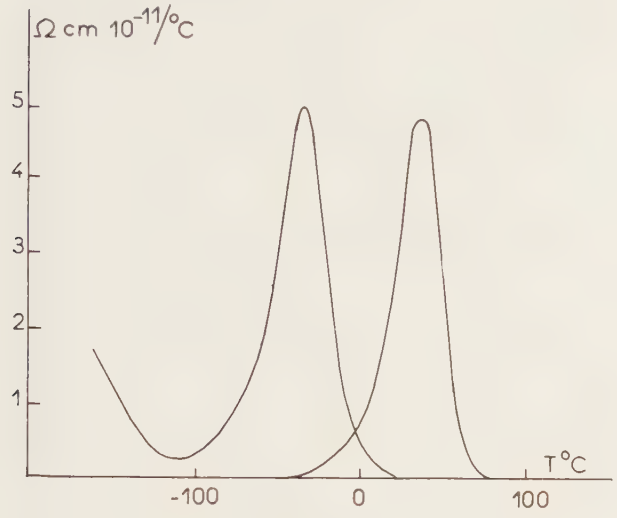


FIG. 5 *b*

Courbes dérivées correspondant à la figure 5 *a*.

β. — *Examen des isochrones (T + I) :*

Nous avons déterminé cinq courbes isochrones (T + I) correspondant à une trempe préalable (T) suivie d'une irradiation (I). Le résultat obtenu diffère selon que la trempe est faite de haute température (trempe forte) ou de basse température (trempe faible). La figure 6*a*

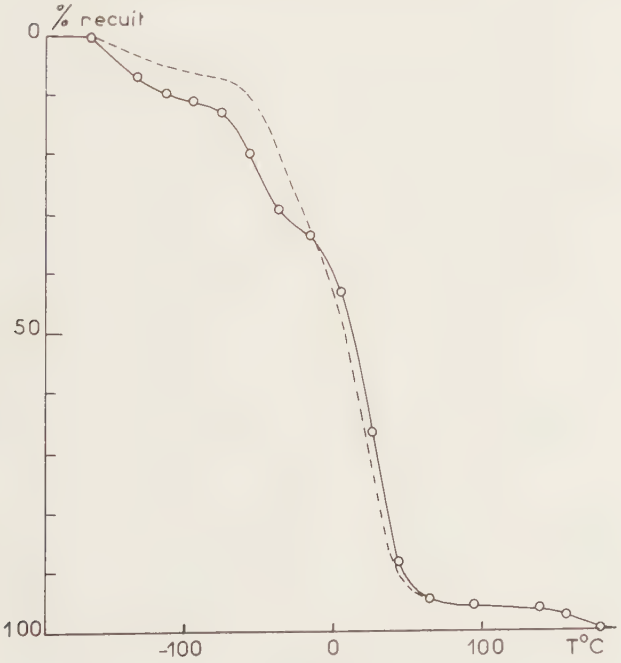


FIG. 6 *a*

Isochrone (T + I) obtenue après une irradiation de $\Delta\rho = 2{,}25 \cdot 10^{-9}$ Ω cm et une trempe préalable de $\Delta\rho = 5{,}2 \cdot 10^{-9}$ Ω cm. Chaque point correspond à un recuit de 5 minutes à la température indiquée.

○ Courbe expérimentale (T + I).

— Courbe théorique (T) + (I).

représente l'isochrone obtenue après une trempe préliminaire forte (de T = 350 °C), amenant une variation de résistivité de $\Delta\rho = 5{,}2.10^{-9}$ Ω cm, suivie d'une irradiation de $\Delta\rho = 2{,}25.10^{-9}$ Ω cm. On constate que la courbe expérimentale (T + I), coupe la courbe somme ((T) + (I)) vers — 20 °C. Au-dessous de — 20 °C, se trouve la partie de l'isochrone correspondant à l'étape III et l'on constate qu'elle est décalée vers les basses températures, de 20 °C. Au-dessus de — 20 °C, on retrouve une courbe en S correspondant au recuit des défauts trempés, mais décalée, au contraire de 6 °C, vers les hautes températures. C'est ce que montre la figure 6*b :*

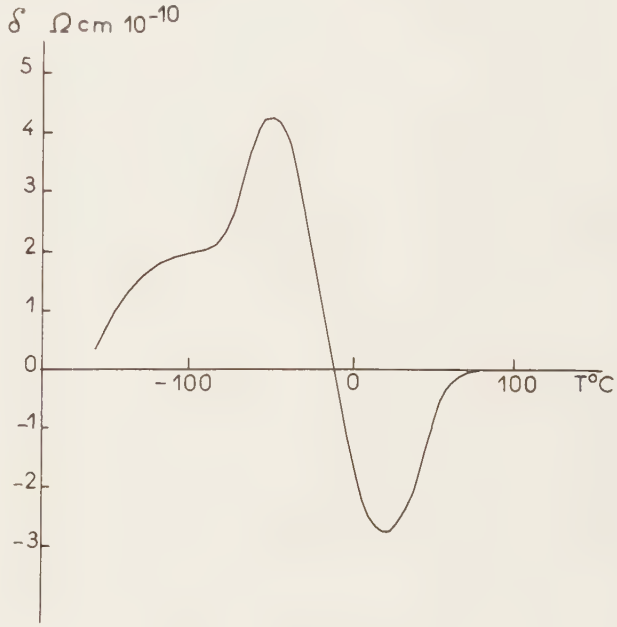


FIG. 6 *b*

Courbe différence $\delta = [(T) + (I)] - (T + I)$ des accroissements de résistivité restant.

la courbe différence, $\varphi = ((T) + (I)) - (T + I)$, qui comporte une partie positive à basse température et une partie négative à température élevée.

Les courbes des figures 7*a* et *b* montrent ce que l'on obtient lorsque la trempe est effectuée d'une température relativement basse. La trempe correspondante a produit $2{,}24.10^{-9}$ Ω cm., et l'irradiation qui a suivi, $2{,}7.10^{-9}$ Ω cm. Ce sont là à très peu près les augmentations de résistivité initiales correspondant aux courbes (T) et (I) de la figure 5. La partie de l'isochrone (T + I) expérimentale se trouve encore au-dessous de la courbe somme ((T) + (I)), c'est-à-dire que l'étape III est accélérée, mais cette fois-ci, les deux courbes se raccordent vers — 10 °C et leur différence n'est pas décelable, à la précision de nos mesures, entre — 10 °C et 180 °C c'est-à-dire dans le domaine de migration des défauts lacunaires et de la disparition des petits amas de lacunes. La courbe φ n'a par suite plus de partie négative à haute température. Examinons tout d'abord les résultats obtenus à température élevée (T > — 20 °C). Ils sont tout à fait en accord avec la théorie en ce qui concerne les lacunes, et peuvent être expliqués de la façon suivante : après trempe de haute température, la

concentration en défauts lacunaires est élevée et la formation de bilacunes pendant la trempe est très probable. Cependant, l'irradiation est faite à une température telle que les interstitiels sont mobiles. Donc, tandis que se forment des paires de Frenkel (*monolacune* + interstitiel), les réactions

$$L_1 + I \longrightarrow O \qquad L_2 + I \longrightarrow L_1 \qquad (22)$$

FIG. 7 *a*

Courbe de recuits isochrones (T + I) obtenue après une trempe (T ≃ 310 °C) de $\Delta\rho = 2.24 \cdot 10^{-9}$ Ω cm. et après une irradiation I de $\Delta\rho = 2.7 \cdot 10^{-9}$ Ω cm. En pointillé nous avons tracé la courbe [(T) + (I)] somme des courbes (T) et (I) correspondantes.

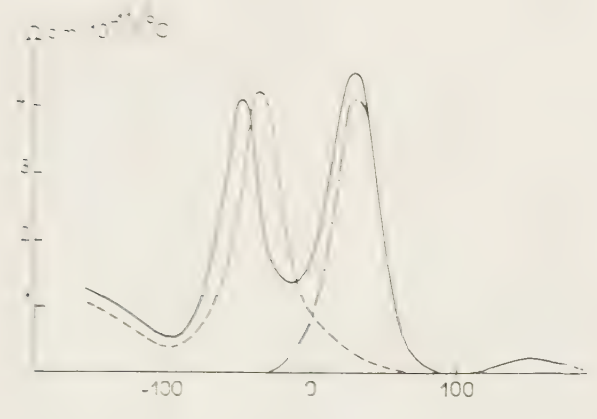


FIG. 7 *b*

Courbe dérivée correspondant à la courbe (T + I) de la figure 7 *a*. En pointillé nous avons reporté les courbes dérivées des isochrones (T) et (I) correspondantes.

Courbe (T + I)
Courbe (I)
Courbe (T)

se produisent. Il y a donc appauvrissement relatif en bilacunes au profit des monolacunes moins mobiles, de sorte que l'étape de migration lacunaire est repoussée vers les hautes températures. Ce processus se trouve encore accentué si l'étape III correspond à la migration de défauts de type interstitiel. Au contraire dans les trempes de basses températures, la proportion des bilacunes est si faible que les processus tels que [22] ne changent pas sensiblement la concentration relative des bilacunes.

L'irradiation aux électrons est donc un moyen de « purifier» une population lacunaire obtenue par trempe, en vue de l'étude des monolacunes.

Examinons maintenant les résultats obtenus en ce qui concerne l'étape III. Cette étape ne peut être attribuée à la migration de monolacunes, puisque nous venons de voir que celles-ci migrent à température beaucoup plus élevée. Nous pouvons donc hésiter entre le mouvement de bilacunes ou de monointerstitiels, ou de bi-interstitiels. L'hypothèse des bilacunes nous semble à éliminer pour plusieurs raisons :

— l'étape III existe dans des métaux (et en particulier le cuivre) irradiés par des électrons d'énergies telles que le déplacement de deux atomes voisins soit extrêmement improbable,

— au paragraphe précédent, nous avons d'ailleurs vu que le mouvement des interstitiels pendant l'irradiation et pendant l'étape II favorisait de plus la destruction des bilacunes au profit des monolacunes,

- - en présence de lacunes, les bilacunes auraient transformé la cinétique des réactions en sens inverse du sens observé, c'est-à-dire que les deux étapes de la courbe ((T) + (I)) auraient eu tendance à se rapprocher et à se confondre. Or, c'est exactement le contraire que l'on observe.

Au contraire, l'hypothèse d'un défaut de type interstitiel dans les étapes II et III serait tout à fait en accord avec les résultats précédents. Elle permettrait de prévoir en particulier la séparation plus grande des étapes (T) et (I) et le sens des déplacements respectifs.

II. — ÉTUDE QUANTITATIVE DES RÉSULTATS

a. — Étude de la restauration des propriétés électriques initiales par des recuits isothermes

Immédiatement après l'irradiation, l'échantillon subissait des recuits à une température T ; chaque recuit était suivi d'une mesure de résistivité électrique. *Isothermes après irradiation seule :* la courbe de la figure 8*a* est une isotherme obtenue à une température T = — 46 °C après une irradiation de $3{,}11 \cdot 10^{-9}$ Ω cm. Avant de subir les recuits isothermes, l'échantillon avait été recuit à — 80 °C de façon à éliminer les défauts recuisant à l'étape III. Sur la figure (8*b*), nous avons porté Log $[-d\,\Delta\rho/dt]$ en fonction de Log $\Delta\rho$, ce qui est une méthode classique pour déterminer l'ordre apparent de réaction ; on constate qu'il tend rapidement vers

2 après avoir été très élevé au début des recuits. L'étape III peut donc être décomposée en deux :

— une étape principale qui obéit à une réaction d'ordre 2 :

$$\frac{d\Delta\rho}{dt} = -\,K_1.\,(\Delta\rho)^2.\,\exp(-E/kT) \qquad (23)$$

Dans cette expression, E = 0,58 eV (voir ci-après) et K_1 est calculée en prenant un point de la courbe Log $\frac{d\Delta\rho}{dt} = f(\text{Log}\ \Delta\rho)$ où l'ordre de réaction est 2.

— une étape qui se superpose à la précédente et qui disparaît rapidement. On peut avoir son importance relative. En effet, l'équation (I) a pour solution :

$$\frac{1}{\Delta\rho} - \frac{1}{\Delta\rho_0} = K_1.t.\,\exp(-E/kT) \qquad (24)$$

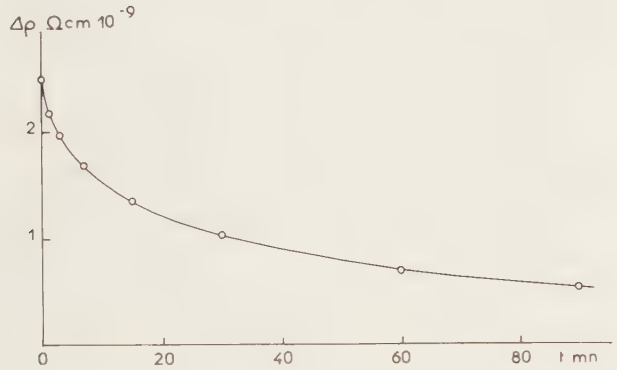


FIG. 8 *a*

Isotherme obtenue, après irradiation seule, à la température T = — 46 °C.

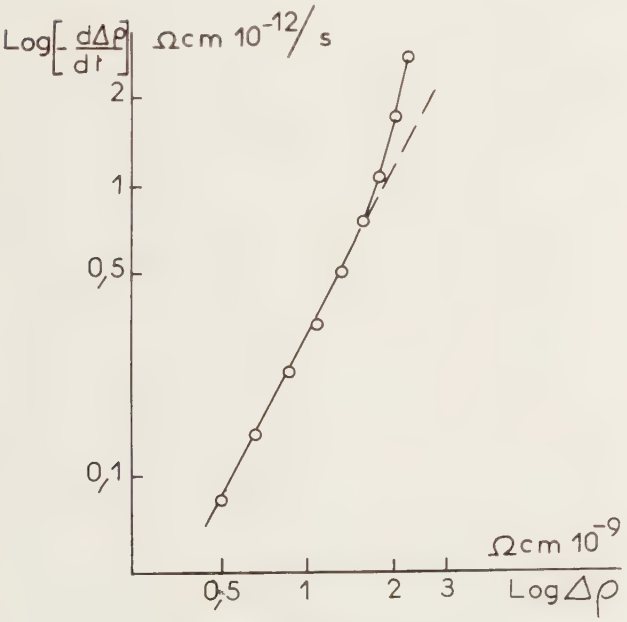


FIG. 8 *b*

Courbe log $[-d\Delta\rho/dt] = f(\log\ \Delta\rho)$ correspondant à la figure 8 *a*.

Dans cette expression, $\Delta\rho_0$ est l'accroissement de résistivité initial qu'on aurait si l'ordre de réaction était 2 ; on calcule $\Delta\rho_0$ par la relation [**24**] en prenant un point de la courbe $\Delta\rho = f(t)$ où l'ordre de réaction est 2.

Après le recuit préliminaire, on a expérimentalement $\Delta\rho_i$.

Par suite, la proportion de sous-étape est :

$$\frac{\Delta\rho_i - \Delta\rho_0}{\Delta\rho_i}$$

On trouve 10 %.

Plusieurs déterminations d'énergie d'activation ont été faites et par deux méthodes différentes :

— La première méthode est celle du changement de température au cours d'une isotherme ; on trace une portion de courbe isotherme à une température T_1 en fonction du temps t ; à un instant donné, on change de température de recuit et on trace une portion d'isotherme à une température T_2. Si α est le rapport des pentes des isothermes en leur point d'intersection on a la relation :

$$E = \frac{\text{Log}\ \alpha}{\left|\frac{1}{kT_1} - \frac{1}{kT_2}\right|}$$

avec :

$$\alpha = \frac{[d\ \Delta\rho\ dt]\ T_2}{[d\ \Delta\rho/dt]\ T_1}$$

Nous avons trouvé :

$$E^{III} = 0{,}57 \pm 0{,}03\ \text{eV}.$$

Les portions d'isothermes étaient faites à — 49,5 °C et — 36 °C.

— La seconde méthode consiste à faire une succession de recuits à deux températures T_1 et T_2 alternativement. Soit $\Delta\rho_j$ l'accroissement de résistivité restant après le j^e recuit de temps tj.

On trace :

$$\frac{\Delta\rho_j - \Delta\rho_{j+1}}{t_j}$$

en fonction de

$$\frac{\Delta\rho_j + \Delta\rho_{j+1}}{2}$$

On obtient ainsi 2 courbes et le rapport α est égal au rapport des ordonnées pour une abcisse donnée.

Nous avons trouvé $E^{III} = 0{,}59\ \text{eV} \pm 0{,}02$. Les isothermes étaient faites à — 41,5 °C et — 29 °C. Nous avons pris comme valeur : E = 0,58 ± 0,03 eV. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par d'autres auteurs [**8**, **9**, **10**, **11**] mais ils diffèrent de ceux de A. Sosin et L. H. Rachal [**12**] qui trouvent E = 0,45 eV après des irradiations aux électrons.

Expériences de trempes seules

Avant de procéder aux expériences d'irradiations avec trempe préalable nous nous sommes assurés que les défauts trempés contenaient une très faible proportion de bilacunes. Pour cela, nous avons repris une étude de trempe faite par d'autres auteurs [7]. Nos résultats sont en parfait accord avec les leurs :

— pour de faibles trempes

$$(\Delta\rho_1^0 \simeq 10^{-9}\ \Omega\ \text{cm},\ T_1 \simeq 280\ ^\circ\text{C})$$

nous trouvons une énergie de migration des défauts lacunaires trempés de 0,67 ± 0,04 eV (en accord avec celle attribuée par De Sorbo et Turnbull aux monolacunes [13] et un ordre de réaction de 1,06 très voisin de 1.

— pour des trempes plus fortes, l'énergie de migration, et l'ordre apparent de réaction s'écartent notablement des valeurs précédentes. Pour une forte trempe ($\Delta\rho_l = 5{,}5.10^{-9}\ \Omega$ cm) l'énergie de migration apparente trouvée (0,45 eV) devient même inférieure à celle attribuée par Doyama et Kœhler aux bilacunes (0,53 eV).

Nous nous sommes donc efforcés, de faire de faibles trempes où l'énergie de mouvement, l'ordre de réaction et la forme des courbes isochrones nous incitent à penser que la proportion de bilacunes doit être faible et de fait les courbes isochrones (T + I) obtenues étaient effectivement du second type, δ étant nul dans le domaine des trempes.

Isothermes après irradiation avec trempe préalable

La figure (9*a*) montre les isothermes obtenues à une température de — 41 °C ; les trempes préalables étaient de $1{,}18.10^{-9}\ \Omega$ cm environ. Avant de subir les recuits isothermes, les échantillons avaient été recuits à — 90 °C de façon à éliminer les défauts de l'étape II. On constate que le recuit de l'étape III est d'autant plus rapide que la trempe est plus forte. D'autre part l'ordre de réaction tend vers 1 à la fin des recuits pour les isothermes (T + I), (fig. 9*b*).

Nous avons vu dans ce qui précède que l'étape III correspond à une réaction du deuxième ordre ; les irradiations avec trempe préalable nous ont amenés à interpréter l'étape III comme étant due à l'annihiliation de lacunes fixes par des interstitiels mobiles. Les travaux les plus récents [12, 14], attribuent l'étape III à la migration de monointerstitiels suivant la réaction :

$$I + L \longrightarrow 0$$

Nous analyserons nos résultats avec cette interprétation. Nous examinerons par ailleurs [15] le modèle où l'étape III est due à la migration de bi-interstitiels.

Expérimentalement, la détermination du rapport ρ_i/ρ_l se fait de la façon suivante à l'aide de la relation 9 :

1) Mesure de $\Delta\rho_l^0$ dû à la trempe.

2) Choix de 2 points A et B correspondant au même accroissement de résistivité (dû à l'irradiation).

3) Mesure du rapport des pentes en ces points A et B, en effet :

$$\alpha = \frac{dC_{i(I)}/dt}{dC_{i(T+I)}/dt} = \frac{(\rho_i + \rho_l)\, dC_{i(I)}/dt}{(\rho_i + \rho_l)\, dC_{i(T+I)}/dt} = \frac{d\ \Delta\rho_{(I)}/dt}{d\ \Delta\rho_{(T+I)}/dt}$$

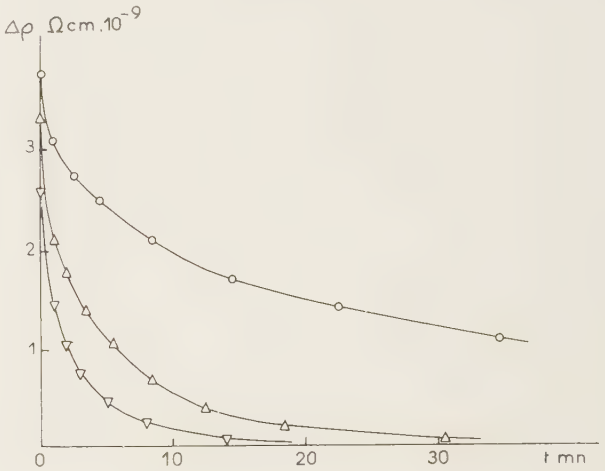


FIG. 9 *a*

Isothermes obtenues à la température de — 41 °C.
○ (I).
Δ (T + I) avec trempe préalable de $1{,}18.10^{-9}\ \Omega$ cm.
Δ (T + I) avec trempe préalable de $2{,}32.10^{-9}\ \Omega$ cm.

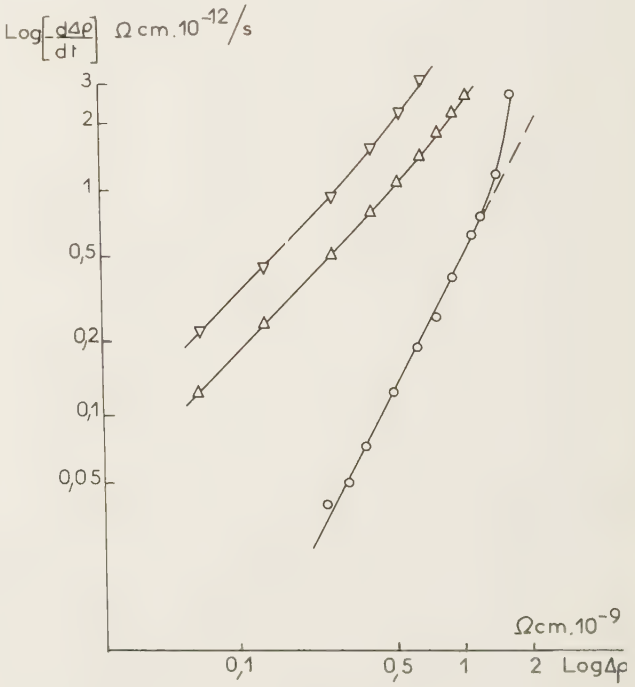


FIG. 9 *b*

Courbes $\log\left(-\frac{d\Delta\rho}{dt}\right) = f(\log\ \Delta\rho)$ correspondant à la figure 9 *a*.

La relation (9) permet de déterminer le rapport ρ_i/ρ_l tout le long des deux isothermes. L'utilisation des courbes de la figure (9) donne : $\rho_i/\rho_l = 2 \pm 0{,}3$. En prenant $\rho_l = 2{,}2\ \mu\ \Omega$ cm/ % at. (16), on obtient la résistivité par paire de Frenkel $\rho_f = \rho_i + \rho_1 = 6{,}6\ \mu\ \Omega$ cm/% at. Avec ces valeurs la constante K de la formule (3) peut être calculée à partir de K_1 (formule 23).

$$K = (\rho_i + \rho_1).\ K_1 = 1{,}5.10^{15}$$

b. — Étude de la restauration par des recuits isochrones

Expérimentalement, les isochrones sont obtenues par des recuits « discontinus » (Δ t/mn de ΔT °C en ΔT °C). Nous avons vérifié par le calcul qu'une courbe obtenue de cette façon est confondue pratiquement à une courbe que l'on obtiendrait par un réchauffement continu de la forme T = AT, à condition de prendre pour A une valeur différente de $\Delta T/\Delta t$. Dans nos expériences il y a équivalence de deux familles de courbes pour A = 1,47 °C/mn, correspondant à $\Delta t = 5$ mn et $\Delta T = 20$ °C.

Notons qu'avec une réaction du deuxième ordre, la température du point d'inflexion T_i des isochrones dépend de la concentration en ce point, selon la formule (12) :

$$C_i + C_l = \frac{EA}{kK} \cdot \frac{\exp(E/kT_i)}{T_i^2} \qquad (12)$$

Nous avons déterminé expérimentalement le déplacement du point d'inflexion. Pour cela, nous avons effectué 5 irradiations, donnant chacune une courbe isochrone, pour des flux d'électrons allant de 2,5 à 15.10^{17} él./cm². Les points expérimentaux sont portés sur la figure (10) et ils se placent sur la courbe correspondant à la relation (12).

Nous avons d'autre part tracé quatre courbes isochrones (T + I) expérimentales. L'application de la relation (14) a donné les résultats résumés dans le tableau ci-dessous.

$\Delta\rho_i$ Ω cm 10^{-9}	1,6	0,56	1,26	1,87
$\Delta\rho_l^0$ Ω cm 10^{-9}	1,29	2,26	2,24	2,3
T_i °C	— 41 °C	— 43° 5	— 44°	— 44° 5
β	1,9	1,85	1,8	2

Les valeurs du rapport ρ_i/ρ_l sont tout à fait en accord avec celles déterminées précédemment par des recuits isothermes. Nous avons porté sur la figure (10) les valeurs de $C_i + C_l$ ($= 2C_i + C_l^0$) au point d'inflexion en fonction de T_i ; les points expérimentaux se placent bien sur la courbe correspondant à la relation (12).

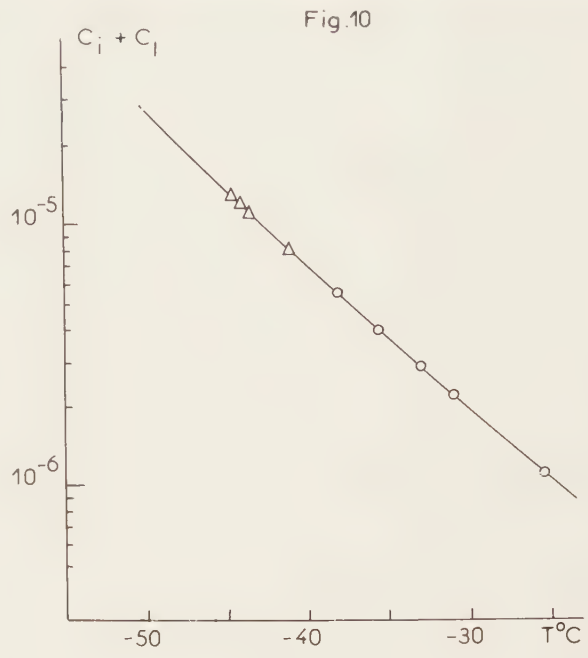


FIG. 10

Concentration $c_i + c_L$ (défauts restant à la température T_i du point d'inflexion des isochrones) en fonction de la température T_i pour $\rho_\rho = 2{,}2\ \mu\Omega$cm/% at.

—— Courbe théorique $c_i + c_L = \dfrac{EA}{kK} \dfrac{e^{Ek/T_i}}{T_i^2}$.

· Points expérimentaux correspondant aux courbes (I).

Δ Points expérimentaux correspondant aux courbes (T + I).

c. — Étude des courbes de production

Nous avons montré sur la figure 4 des courbes d'augmentation de résistivité $\Delta\rho$ en fonction du flux d'électrons ; le dépouillement des résultats est en cours, et jusqu'ici, nous n'avons pu faire que quelques évaluations du rapport ρ_i/ρ_l par application de la formule (21) : nous trouvons $\beta = 2 \pm 0{,}5$. Ce résultat est en parfait accord avec les valeurs trouvées ci-dessus à l'aide des recuits isochrones et isothermes.

RÉSULTATS PRÉLIMINAIRES SUR LE CUIVRE

Dans l'étude que nous avons faite, la méthode expérimentale utilisée est identique à celle employée dans le cas de l'aluminium. Cependant, la nécessité d'éviter l'oxydation nous a fait effectuer les trempes sous atmosphère d'hydrogène. Un travail précédent nous a en effet montré que l'hydrogène ne modifiait pas la forme de la position des isochrones de recuits de trempes dans l'échelle des températures. Cette conclusion semble d'autre part en accord avec les résultats récemment obtenus par Seeger et al. [17].

Étude de la restauration après irradiation

a) L'examen de courbes isochrones après trempes (T), et après irradiation (I) montre que les différences entre l'étape principale de recuit de nos trempes et l'étape III sont moins marquées dans le cuivre que dans l'aluminium. La figure 11 montre, par exemple, quelques-unes

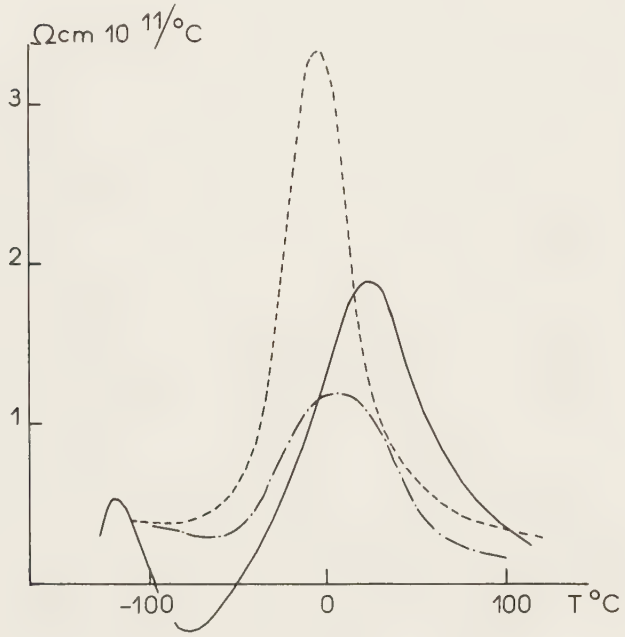


FIG. 11

Courbes dérivées d'isochrones après trempe et irradiation.

—— Courbe (T) après trempe de $\Delta\rho = 1{,}85 \cdot 10^{-9}$ Ω cm.

- - - - Courbe (I_1) après irradiation de $\Delta\rho = 3{,}42 \cdot 10^{-9}$ Ω cm.

—.— Courbe (I_2) après irradiation de $\Delta\rho = 1{,}64 \cdot 10^{-9}$ Ω cm.

des courbes dérivées d'isochrones obtenues avec le cuivre. La courbe (T) a été obtenue après trempe de 650 °C environ avec une vitesse de trempe d'environ 18 000 °C par seconde. Le sommet du pic se trouve à 26 °C et sa largeur à mi hauteur est de 76 °C. Les courbes (I_1) et (I_2) correspondent à des irradiations simples l'une importante :

$$\Delta\rho_{i1} = 3{,}42 \cdot 10^{-9}\ \Omega\ \text{cm}$$

l'autre relativement faible :

$$\Delta\rho_{i2} = 1{,}64 \cdot 10^{-9}\ \Omega\ \text{cm}$$

On constate que les pics correspondants sont à — 4 °C et + 8 °C respectivement alors que leurs largeurs à mi hauteur sont 42 °C et 84 °C. Les décalages en température entre les pics de recuits de l'étape III, et celui de la trempe, $\Delta T_1 = 30$ °C et $\Delta T_2 = 18$ °C, sont donc toujours inférieurs aux largeurs des pics. Il sera donc difficile de séparer ceux-ci dans une expérience de trempe et d'irradiation combinées.

b) La figure (12*a*) montre l'isochrone (T + I) obtenue après une trempe (T) de $\Delta\rho_T = 2{,}18 \cdot 10^{-9}$ Ω cm dans l'hydrogène suivie d'une irradiation telle que $\Delta\rho_I = 1{,}65 \cdot 10^{-9}$ Ω cm. En pointillé, nous avons porté sur le même diagramme la courbe ((T) + (I)) obtenue en additionnant simplement les isochrones (T) et (I). Les deux courbes ne coïncident pas, et la figure (12*b*) représente la courbe différence :

$$\delta = ((T) + (I)) - (T + I)$$

On voit que lorsque la température s'élève, à l'approche du domaine de l'étape III, on a $\delta > 0$, c'est-à-dire que la restauration est accélérée par la trempe. Cependant, quand la température s'élève ce phénomène s'atténue rapidement, et l'on constate que dans le domaine du recuit des trempes si l'échantillon a été trempé préalablement à l'irradiation, il y a moins de résistivité qui disparaît dans le domaine de température correspondant au recuit de la résistivité trempée.

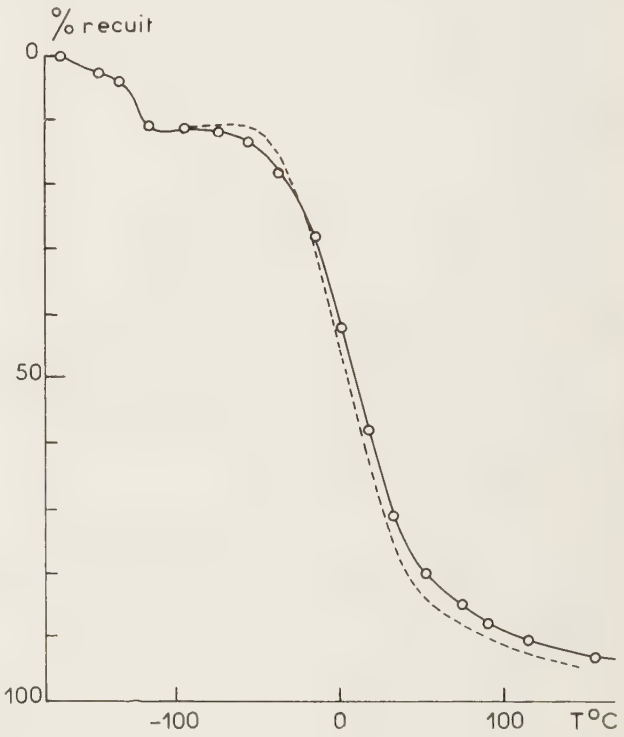


FIG. 12 *a*

Courbe de recuits isochrones (T + I) obtenue après une trempe T de $\Delta\rho = 2{,}18 \cdot 10^{-9}$ Ω cm et une irradiation I de $\Delta\rho = 1{,}65 \cdot 10^{-9}$ Ω cm.

En pointillé nous avons tracé la courbe théorique ([(T) + (I)] somme des courbes (T) et (I) obtenues séparément.

Pour étudier ce phénomène, nous avons fait trois études isochrones (T + I) correspondant à des trempes à partir de températures de plus en plus élevées. Les courbes correspondantes, *a*, *b*, *c*, des différences

$$\delta = ((T) + (I)) - (T + I)$$

sont tracées sur la figure (12 *b*). Les courbes (*a*) et (*c*) correspondent à des trempes très différentes suivies d'irradiations jusqu'à des valeurs de $\Delta\rho_I$ à peu près égales. On constate que, plus la trempe est forte :

— plus δ augmente dans les domaines des étapes II et III,

— plus δ augmente en valeur absolue ($\delta < 0$) dans le domaine de restauration des trempes.

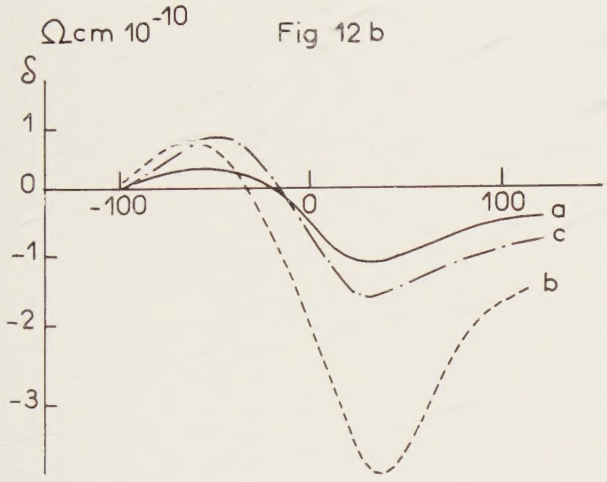


FIG. 12 *b*

Courbe δ des différences d'isochrones [(T) + (I)] et (T + I).
courbe (*a*) : trempe de 1,21 . 10^{-9} Ω cm
irradiation de 1,74 . 10^{-9} Ω cm
courbe (*b*) : trempe de 1,99 . 10^{-9} Ω cm
irradiation de 2,49 . 10^{-9} Ω cm
courbe (*c*) : trempe de 2,18 . 10^{-9} Ω cm
irradiation de 1,65 . 10^{-9} Ω

Les courbes (*b*) et (*c*) correspondent à des trempes à peu près égales, mais l'irradiation (*b*) a été beaucoup plus forte que l'irradiation (*c*). On voit que les défauts trempés migrent d'autant moins vite au voisinage de 50 °C que l'irradition est plus forte.

Ces phénomènes nous semblent pouvoir être expliqués de la façon suivante :

— la trempe préalable, trop lente, produit une fraction importante de bilacunes mélangées aux monolacunes,

— pendant l'irradiation, les atomes interstitiels produits se combinent avec les lacunes, mais ils détruisent aussi une partie des bilacunes les transforment en monolacunes, selon la réaction :

$$L_2 + I \longrightarrow L$$
(fixe) (mobile)

Ainsi après l'irradiation, l'échantillon contient moins de bilacunes qu'après la trempe.

— pendant les recuits isochrones, ce processus se poursuit pendant les étapes II et III, ce qui explique que δ soit > 0 dès — 100 °C : le recuit des interstitiels mobiles est accéléré du fait que la trempe a augmenté la concentration instantanée des centres d'annihilation. Cette mobilité des interstitiels du cuivre dans l'étape III avait été proposée antérieurement par Brinkman, Dixon et Meechan [**18**].

— le pic de restauration de (T) centré aux environs de 25 °C est dû au mouvement de bilacunes. Celles-ci s'étant raréfiées lorsque l'on pénètre dans le domaine de température correspondant à ce pic, c'est-à-dire dès — 50 °C, cette raréfaction se manifeste par un fort ralentissement de la restauration dû à T. Il en résulte que δ qui était > 0 diminue s'annule et change de signe.

— Une étude quantitative n'est pas possible, du fait de la participation des atomes d'hydrogène au recuit de la partie (T) des isochrones. Cependant, les résultats obtenus nous ont permis de définir les conditions à réunir pour un tel travail, actuellement en cours.

CONCLUSION

Nous avons tout d'abord montré que les expériences de trempes et d'irradiation combinées pouvaient servir à étudier l'accumulation des défauts pontuels dans un métal irradié, et la nature des réactions responsables des étapes de restauration ainsi que leurs mécanismes.

L'étude expérimentale de l'aluminium et du cuivre nous amène aux conclusions principales suivantes :

— les étapes I, II, III dans chacun de ces métaux sont dues au mouvement de défauts interstitiels qui se combinent à des lacunes.

Dans l'aluminium, l'hypothèse que le défaut mobile dans l'étape III est un mono-interstitiel conduit au résultat que la résistivité de ce défaut est double de celle d'une lacune.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier Mlle Y. Cauchois, Directeur du Laboratoire de Chimie Physique qui nous a donné toutes facilités pour effectuer ce travail. Nous remercions aussi M. Boivin et l'équipe de l'accélérateur d'électrons qui ont assuré les irradiations.

BIBLIOGRAPHIE

[1] R.O. SIMMONS et R.W. BALLUFFI, *Phys. Rev.*, **119**, 600 (1960) ; **125**, 862 (1962) ; **117**, 62 (1960) et **129**, 1533 (1963).

[2] R.O. SIMMONS, J.S. KOEHLER, R.W. BALLUFFI, *Proc. Symp. « Rad. Dam. in Solids »*, Venise, **1**, 155, 1962.

[3] A. SEEGER, *Idem*, **1**, 101, 1962.

[4] C. BUDIN, P. LUCASSON, *Physics Letters*, **16**, 229 (1965).

[5] C. BUDIN, P. LUCASSON, A. LUCASSON, *J. de Phys.*, **25**, 751 (1964) ; **26**, 9 (1965).

[6] C. PANSERI, T. FEDERIGHI, *Phil. Mag.*, 3, 1223 (1958).

[7] M. Doyama, J.S. Koehler, *Phys. Rev.*, **134**, A 522, 1964.

[8] T.S. Hutchinson, *Appl. Phys. Letters*, **6**, 22 (1965).

[9] C. Frois, O. Dimitrov, C.R. *Acad Sc.*, Paris, **258**, p. 5647-5650 (juin 64).

[10] A.W. Mc. Reynolds, W. Augustyniak, M. Mc. Keown, D.B. Rosenblatt, *Phys. Rev.*, **98** (1955), p. 418.

[11] S. Ceresara, T. Federighi et D. Gelli, *Il nuovo Cimento*, **29** (1963), p. 1244.

[12] A. Sosin, L.H. Rachal, *Phys. Rev.*, **130** (1963), p. 2238.

[13] W. Desorbo, D. Turnbull, *Acta Met.*, **7** (1959), 83 ; *Phys. Rev.*, **115** (1959), 560.

[14] C.L. Snead, J.R. and P.E. Shearin, *Phys. Rev.*, **140**, 5 A (1965), A 1781.

[15] Cl. Budin, *Thèse de Doctorat* A. O. 1058.

[16] R.O. Simmons, J.S. Koehler and R.W. Balluffi, *Symposium on Radiation Damage in Solids and Reactor Materials*, Venise, 1962 ; *Radiation Damage in Solids I* (Int. At. Energy, Ag., Vienna), p. 155.

[17] F. Ramsteiner, G. Lampert, A. Seeger, W. Schule, *Phys. Stat. Sol.*, **8**, 863 (1965).

[18] J.A. Brinkman, L.E. Dixon, C.J. Meechan, *Acta Met.*, **2**, 38 (1954).

Communication extraite du X^e Colloque de Métallurgie, juin 1966. Imprimerie SAMIE Bordeaux.